(19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報(A)

FΙ

(11)特許出願公開番号

特開平6-283860

(43)公開日 平成6年(1994)10月7日

(51)Int.Cl.⁵

識別記号

庁内整理番号

技術表示箇所

H 0 5 K 3/46 E 6921-4E

S 6921-4E

3/38

C 7011-4E

審査請求 未請求 請求項の数7 OL (全 7 頁)

(21)出願番号

特願平5-247798

(22)出願日

平成5年(1993)10月4日

(31)優先権主張番号 特願平5-31359

(32)優先日

平 5 (1993) 1 月26日

(33)優先権主張国

日本(JP)

(71)出願人 000000158

イビデン株式会社

岐阜県大垣市神田町2丁目1番地

(72)発明者 川出 雅人

岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1-1 イビデ

ン株式会社内

(72)発明者 後藤 彰彦

岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1-1 イビデ

ン株式会社内

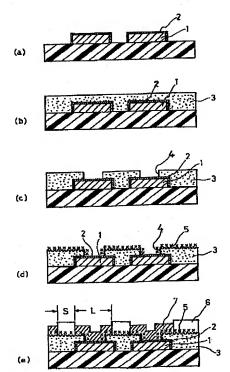
(74)代理人 弁理士 小川 順三 (外1名)

(54)【発明の名称】 多層プリント配線板およびその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 多層プリント配線板の耐ヒートサイクル特性 を向上させること。

【構成】 導体回路(1)が設けられた基板を、少なく ともCu化合物、Ni化合物および次亜リン酸塩を含有する 無電解めっき浴中に浸漬することにより、前記導体回路 (1) 表面の少なくとも一部に、Cu、NiおよびP、好ま しくは90<Cu<100mo1%, 0<Ni< 10mo1%および0< P< 10mol%からなる粗化層 (2) を形成し、その後、 常法に従って得られる多層プリント配線板である。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板上に、表面の少なくとも一部に粗化層を有する導体回路が設けられ、さらにこの導体回路を含む基板上に層間絶縁材層が設けられ、そしてさらに、この層間絶縁材層上に他の導体回路が設けられてなる多層プリント配線板において、

前記粗化層は、Cu, NiおよびPからなる共晶化合物を含む層で構成されていることを特徴とする多層プリント配線板。

【請求項2】 前記粗化層は、90 < Cu < 100mo1%,0 < Ni < 10mo1% および<math>0 < P < 10mo1% からなる共晶化合物を含む層で構成されていることを特徴とする請求項1 に記載の多層プリント配線板。

【請求項3】 前記粗化層は、針状結晶の被膜である請求項1または2に記載の多層プリント配線板。

【請求項4】 前記粗化層は、その厚さが 5μ m以下の被膜である請求項 $1\sim3$ のいずれか1つに記載の多層プリント配線板。

【請求項5】 基板上に設けられた導体回路表面の少なくとも一部に粗化層を形成し、次いで、前記基板上に層間絶縁材層を形成し、その後、その層間絶縁材層上に導体回路を設ける多層プリント配線板の製造方法において

導体回路が設けられた基板を、少なくともCu化合物、Ni 化合物および次亜リン酸塩を含有する無電解めっき浴中に浸漬することにより、前記導体回路表面の少なくとも一部に、Cu, NiおよびPからなる共晶化合物を含む粗化層を形成することを特徴とする多層プリント配線板の製造方法。

【請求項 6 】 浴中のCuイオン濃度,Niイオン濃度および次亜リン酸イオン濃度が、それぞれ、 $2.2 \times 10^{2} \sim 4.1 \times 10^{2} \, \text{mol}/1$, $2.2 \times 10^{3} \sim 4.1 \times 10^{2} \, \text{mol}/1$, $0.20 \sim 0.25 \, \text{mol}/1$ であるめっき浴を用いる無電解めっきを施すことにより、導体回路表面の少なくとも一部に、 $90 < \text{Cu} < 100 \, \text{mol}$ %からなる共晶化合物を含む粗化層を形成することを特徴とする請求項 5 に記載の多層プリント配線板の製造方法。

【請求項7】 前記Cu化合物、Ni化合物および次亜リン酸塩は、それぞれ硫酸銅、硫酸ニッケルおよび次亜リン酸ナトリウムである請求項5または6に記載の多層プリント配線板の製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【産業上の利用分野】本発明は多層プリント配線板およびその製造方法に関し、特に、耐ヒートサイクル特性に優れる多層プリント配線板およびその製造方法について提案する。

[0002]

【従来の技術】配線の高密度化あるいは演算機能の高速

化に好適な多層プリント配線板は、近年、導体回路と層間絶縁材層とを交互にビルドアップし、バイアホールなどによって内・外装回路を接続,導通させてなるビルドアップ多層配線板が注目を浴びている。このビルドアップ多層配線板は、主としてアディティブ法により製造されている。

【0003】このアディティブ法は、ガラスエポキシ等の絶縁基板上に無電解めっき用樹脂絶縁材を塗布することにより絶縁材層を形成し、次いでこの絶縁材層の表面を粗化した後、その粗化面にめっきレジストを形成し、その後、無電解めっきによって導体回路となる金属を付着させる方法である。

【0004】このような方法によると、粗化された絶縁 材層上に導体回路をめっき等によって付着させることか ら、層間絶縁材層とその上に設けられる導体回路との密 着性を向上させることができる。

【0005】一方で、上記方法において、導体回路とその上に設けられる層間絶縁材層との密着性を改善する手段としては、従来、導体回路表面を酸化、還元して、表20 面を粗化する、いわゆる黒化・還元処理が行われている。このような黒化・還元処理を行うと、導体回路の表面が粗化され、この粗化面がアンカーとなって、層間絶縁材層と導体回路との結合を物理的に強化させることができる。

[0006]

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、導体回路とその上に設けられる層間絶縁材層との密着性は、上述したような黒化・還元処理技術を用いても、なお不十分であり、環境の厳しい条件下では、プリント配線板の30 耐ヒートサイクル特性に欠けるという問題があった。例えば、-6℃~150℃の MIL-883 に準じた条件下での試験によると、プリント配線板の耐ヒートサイクル特性は、層間絶縁材層が剥離を生じない最大サイクル数で300サイクル程度であった。

【0007】そこで本発明の目的は、従来技術が抱える 上記問題を解決することにあり、特に、耐ヒートサイク ル特性に優れる多層プリント配線板およびその製造技術 を提供することにある。

[0008]

50

1 【課題を解決するための手段】発明者らは、上記目的の 実現に向け鋭意研究した結果、導体回路と層間絶縁材層 との界面に針状結晶の無電解めっき皮膜からなる粗化層 を設けることにより、上記目的を実現できることを見出 し、本発明に想到した。

【0009】すなわち、本発明は、基板上に、表面の少なくとも一部に粗化層を有する導体回路が設けられ、さらにこの導体回路を含む基板上には層間絶縁材層が設けられ、そしてさらに、この層間絶縁材層上には他の導体回路が設けられてなる多層プリント配線板において、前記粗化層は、Cu, NiおよびP、好ましくは90<Cu<100m

o1%, 0 < Ni < 10mo1%および0 < P < 10mo1%からな る共晶化合物を含む層で構成されていることを特徴とす る多層プリント配線板であり、前記粗化層は、針状結晶 の被膜であり、その厚さが 5 μ m以下の被膜であること が望ましい。そして、上記多層プリント配線板の製造方 法は、基板上に設けられた導体回路表面の少なくとも一 部に粗化層を形成し、次いで、前記基板上に層間絶縁材 層を形成し、その後、その層間絶縁材層上に導体回路を 設ける多層プリント配線板の製造方法において、導体回 路が設けられた基板を、少なくともCu化合物、Ni化合物 および次亜リン酸塩を含有する無電解めっき浴中に浸漬 することにより、前記導体回路表面の少なくとも一部 に、Cu、NiおよびPからなる共晶化合物を含む粗化層を 形成することを特徴とする多層プリント配線板の製造方 法であり、浴中のCuイオン濃度, Niイオン濃度および次 亜リン酸イオン濃度が、それぞれ、 2.2×10²~ 4.1× $10^{-2} \text{ mol} / 1$, 2.2 $\times 10^{-3} \sim 4.1 \times 10^{-3} \text{ mol} / 1$, 0.20 ~0.25 mol/1 であるめっき浴を用いる無電解めっき (共晶めっき)を施すことにより、導体回路表面の少な くとも一部に、90<Cu<100mol%, O<Ni< 10mol%お よび0<P< 10mo1%からなる共晶化合物を含む粗化層 を形成することが望ましく、また、前記Cu化合物、Ni化 合物および次亜リン酸塩は、それぞれ硫酸銅、硫酸ニッ ケルおよび次亜リン酸ナトリウムであることが望まし い。なお、本発明では、導体回路が設けられた基板は、 多層基板であっても差支えない。

[0010]

【作用】黒化還元処理による粗化層は、銅表面を酸化し て酸化銅を形成させることにより得られるが、この粗化 層を構成する酸化銅の強度が低く、それ故に、熱衝撃に より破壊されて層間剥離を起こしやすい。この点、本発 明の共晶めっきによる粗化層は、この粗化層を構成する Cu, NiおよびPからなる共晶化合物自体の強度が高く、 しかも、針状結晶であるためにアンカーとしての効果に 優れ、導体回路と層間絶縁材層とを強固に密着させるこ とができ、それ故に、熱衝撃による層間剥離が生じにく く、耐ヒートサイクル特性が向上する。さらに、黒化還 元処理による粗化層は、酸化銅または銅が表面に曝露さ れているために、化学銅めっき浴のアルカリ液で溶解 し、いわゆるハローイング現象を生じやすく、しかも、 銅表面が酸化されたりする。この点、本発明の共晶めっ きによる粗化層は、Cuに比べて耐薬品性・耐酸化性が高 いCu-Ni-P共晶化合物で形成されているため、化学銅 めっき浴中で溶解したり酸化したりせず、高い密着力を 確保できる。以上説明したように本発明の多層プリント 配線板は、導体回路と層間絶縁材層の界面に設けられる 無電解めっき膜からなる粗化層が、Cu, NiおよびPから なる共晶化合物である点に特徴がある。

【0011】ここに、本発明において、上記共晶化合物は、図1の斜線で示した範囲、すなわち、90 < Cu < 100m

o1%, 0 < Ni < 10mo1%および0 < P < 10mo1%からなることが好ましい。この理由は、Cuが90 mo1%以下だと析出皮膜の結晶が粉状になり、Niが 10mo1%以上だと析出皮膜の結晶が粉状になると共に導電性が悪くなり、Pが 10mo1%以上だと抵抗値が高くなり針状結晶となりにくいからである。すなわち、上記組合せにおいて、析出被膜の結晶が針状構造になり、アンカー効果に優れる構造となるからである。

【0012】本発明において、上記粗化層は、その厚さが 5μ m以下の皮膜であることが望ましく、特に 0.5μ m $\sim 2\mu$ mの範囲が好適である。この理由は、 0.5μ m 未満では、アンカー効果が低く、一方、 5μ m超では、表面粗度が大きくなりすぎ、却って密着強度が低下してしまうからである。

【0013】なお、本発明の多層プリント配線板は、基板上の導体回路と層間絶縁材層上に設けられた他の導体回路とが、バイアホールやスルーホールで電気的に接続されていてもよい。但し、バイアホールで接続する場合、接続箇所の粗化層は、予め除去されているか、粗化層を設けないことが望ましい。その理由は、接続箇所に粗化層があると、わずかではあるが抵抗が高くなるからである。

【0014】本発明において、層間絶縁材層として用い る樹脂絶縁材は、酸もしくは酸化剤に対して難溶性の樹 脂からなるマトリックス中に酸もしくは酸化剤に対して 可溶性の硬化処理された耐熱性樹脂粉末を分散してなる ものであることが望ましい。この理由は、上記樹脂絶縁 材を用いて得られる層間絶縁材層は、酸あるいは酸化剤 によって容易に粗化面を設けることができ、層間絶縁材 層とその上に無電解めっきにより設けられる導体回路と 30 の密着性を向上させることができるからである。このよ うな粗化面を形成するためのアンカー形成用耐熱性樹脂 粉末は、例えば、**①**平均粒径10 μ m以下の耐熱性樹脂粉 末、②平均粒径2 μ m以下の耐熱性樹脂粉末を凝集させ て平均粒径2~10μmの大きさとした凝集粒子、③平均 粒径2~10μmの耐熱性樹脂粉末と平均粒径2μm以下 の耐熱性樹脂粉末との混合物、**④**平均粒径 2~10 μ mの 耐熱性樹脂粉末の表面に、平均粒径2μm以下の耐熱性 樹脂粉末もしくは平均粒径2μ m以下の無機粉末のいず れか少なくとも1種を付着させてなる擬似粒子、から選 ばれることが好適である。なお、形成されるアンカーの 形状や深さについては、粒径の異なる樹脂粉末にて表面 粗度が1~20μmの範囲内になるようにすることが望ま しく、かかる場合に、導体の十分な密着強度が得られ る。また、上記樹脂絶縁材を構成するマトリックス樹脂 は、感光特性を示すものであることが望ましい。これ は、感光特性を示す樹脂を用いることにより、露光、現 像で容易にバイアホールを形成できるからである。

【0015】次に、本発明の多層プリント配線板の製造 50 方法について説明する。本発明の製造方法は、導体回路

10

40

5

が設けられた基板を、少なくともCu化合物、Ni化合物および次亜リン酸塩を含有するめっき浴中に浸漬して無電解めっきを施すことにより、前記導体回路表面の少なくとも一部に、Cu, NiおよびPからなる共晶化合物を含む粗化層を形成する点に特徴がある。これによれば、無電解めっきによって析出する皮膜の結晶は、針状結晶構造のCu、NiおよびPからなる共晶化合物となり、この針状結晶構造が、導体回路とその上に設けられる層間絶縁材層との密着性を向上させるアンカー効果として作用する。

【0016】ここで、上記無電解めっき浴中のCuイオン 濃度,Niイオン濃度および次亜リン酸イオン濃度は、それぞれ、 $2.2 \times 10^2 \sim 4.1 \times 10^2 \text{ mol}/1$, $2.2 \times 10^3 \sim 4.1 \times 10^3 \text{ mol}/1$, $0.20 \sim 0.25 \text{ mol}/1$ であることが望ましい。この理由は、上記範囲内で、析出する皮膜の結晶構造が針状構造になるため、アンカー効果に優れるからである。なお、無電解めっき浴には、上記化合物の他に錯化剤や添加剤等を適宜添加してもよい。また、無電解めっきを施す前には、Pdなどの触媒核を予め付与しておいてもよい。

【0017】上記無電解めっきの条件は、浴温度が60~80℃、析出速度が $1\sim1.5~\mu\,\text{m}/10$ 分、浴比が $0.5\sim1.0~d\,\text{m}^2/1$ 、浴 $p\text{H}が8\sim10$ 、めっき時間が $5\sim20$ 分であることが望ましい。これは、上記条件を逸脱すると、析出するめっき被膜が、緻密にならず、耐ヒートサイクル特性が著しく低下してしまうからである。

【0018】本発明方法においては、基板上の導体回路表面に粗化層を形成する上記処理を終えた後、この導体回路を含む基板上に層間絶縁材層を設け、これにバイアホール用の凹部やスルーホール用の貫通孔を形成し、そしてさらに、この層間絶縁材層上に、必要に応じてめっきレジストを形成し、無電解めっきにより他の導体回路を設け、多層プリント配線板を得る。ここで、バイアホールにより上層と下層の導体回路を接続する場合には、接続箇所の粗化層は、予め除去されているか、粗化層を下層の導体回路に設けないことが必要である。このためには、無電解めっきにより導体回路表面に粗化層を設ける前に、バイアホールにより接続される導体回路部分をマスクしておく方法がよい。なお、本発明における上層ならびに内層の導体回路は、常法に従い設けることができる。以下、実施例について詳細に説明する。

[0019]

【実施例】 (実施例 1) ビルドアップ法による多層プリント配線板を、以下に示す製造工程(1) \sim (10)にしたがって得た。

(1) 銅張積層板をエッチングして内層回路 1 を形成した後、その基板を酸性脱脂し、ソフトエッチングし、Cu上にPd触媒を置換付与し、活性化した後、表 1 に示す組成の無電解めっき浴にてめっきを施し、Ni - P- Cu共晶の厚さ 1 μ mの粗化層 2 を得た。この粗化層 2 の組成は、

6

EPMA (蛍光 X 線分析器) で分析した結果、Cu; 98 mol%、Ni; 1.5mol%、P; 0.5mol%であった。

[0020]

【表1】

硫酸銅 : 10.1g/1

硫酸ニッケル :1.0 g/1

次亜リン酸ナトリウム:20.2g/1

水酸化ナトリウム : 適量 pH : 9.0

pH : 9.0 浴比 : 0.5 dm²/l

【0021】(2) クレゾールノボラック型エポキシ樹脂(油化シェル製,商品名:エピコート180S) 50%アクリル化物60重量部に、ビスフェノールA型エポキシ樹脂(油化シェル製,商品名:E-1001) 40重量部、ジアリルテレフタレート15重量部、2ーメチルー1ー [4ー(メチルチオ)フェニル] 2ーモルフォリノプロパノンー1(チバ・ガイギー製,商品名:イルガキュアー907) 4重量部、粒径が5.5μmのエポキシ樹脂微粉末(東レ製)10重量部、および粒径が0.5μmのエポキシ樹脂微粉末(東レ製)25重量部を配合した。そして、この混合物にブチルセロソルブを適量添加しながらホモディスパー攪拌機で攪拌し、樹脂絶縁材のワニスを作成した。

【0022】(3) ロールコータを用いて内層回路 1 上に上記のワニスを塗布した後、塗布されたワニスを100 $^{\circ}$ で 1 時間乾燥硬化させ、厚さ $50\,\mu$ mの感光性の層間絶縁材層 3 を形成した(図 2 (b) 参照)。

【0023】(4) 前記工程(3) の処理を施した配線板に、直径 $100~\mu$ mの黒円および打ち抜き切断部位が黒く印刷されたフォトマスクフィルムを密着させ、超高圧水銀灯により500~m j / c m^2 で露光した。これをクロロセン溶液で超音波現像処理することにより配線板上に直径 $100~\mu$ mのバイアホールとなる開口4を形成した。

【0024】(5) 前記配線板を超高圧水銀灯により約300 mj/cm²で露光し、さらに100℃で1時間および150℃で3時間加熱処理した。これらの処理により、フォトマスクフィルムに相当する寸法精度に優れた開口4を有する層間絶縁材層3を形成した(図2(c)参照)。

【0025】(6) 前記配線板をクロム酸に10分間浸漬することにより、層間絶縁材層3の表面を粗化した。さらに、中和後に水洗および湯洗して、配線板からクロム酸を除去した。

【0026】(7) 前記配線板を市販のPd-Snコロイド触 媒に浸漬して、開口4の内壁面および粗化された層間絶 縁材層3の表面にPd-Snコロイド5を吸着させ、120℃ で30分間加熱処理した。(図2(d)参照)。

【0027】(8) 前記配線板上にドライフィルムフォトレジストをラミネートすると共に、露光現像を行ってメッキレジスト6を形成した。

7

【0028】(9) 前記配線板を、還元剤である37%のホルムアルデヒド水溶液に浸漬し、Pdを活性化させた。このときの処理温度は40℃,処理時間は5分である。

【0029】(10)前記配線板を表2に示す組成の無電解めっき液に直ちに浸漬し、その状態で15時間保持することにより、めっき膜の厚さ約 35μ m, $L/S=75\mu$ m/ 75μ mの導体回路7を備える多層プリント配線板を得た(図2(e)参照)。

[0030]

【表2】

CuSO4 ・5H2O : 111.8 g/10リットル EDTA・2Na : 388.2 g/10リットル NaOH : 111.8 g/10リットル HCHO : 35.8 g/10リットル 添加剤 : 適宜

【0031】(実施例2)本実施例では、前記実施例1 とは異なる樹脂組成を採用し、ビルドアップ法により多 層プリント配線板を得た。

(1) フェノールアラルキル型エポキシ樹脂(三井東圧化学製,商品名:XL-225 L)の50%アクリル化物100重量部に、ジアリルテレフタレート15重量部、2-3 チルー1 - [4-(メチルチオ) フェニル] -2-モルフォリノプロパノン-1(チバ・ガイギー製,商品名イルガキュア-907)4重量部、イミダゾール系硬化剤(四国化成製,商品名:<math>2PZ-CN)4重量部および平均粒径が5.0 μ mのメラミン樹脂微粉末(ホーネンコーポレーション製)10重量部を配合した。そして、この混合物にブチルカルビトールを適量添加して三本ローラで攪拌し、樹脂絶縁材のワニスとした。

【0032】(2) 内層回路1を形成した後、実施例1と同様の無電解めっき浴にて厚さ1.5 μmの粗化層2を形成し、さらにその配線板上に、ギャップコータを用いて上記のワニスを塗布した後、塗布されたワニスを80℃で1時間乾燥硬化させ、厚さ70μmの感光性の層間絶縁材層3を形成した。

【0033】(3) 上記実施例1の工程(4) ~(6) に従って、バイアホールとなる開口4の形成および層間絶縁材層3の表面粗化を行った。なお、層間絶縁材層3の表面粗化処理には、クロム酸を使用した。

【0034】(4) 配線板を市販のPd-Snコロイド触媒に 浸漬して、開口4の内壁面および粗化された層間絶縁材 層3の表面にPd-Snコロイド5を吸着させた。 *【0035】(5) 前記配線板上にドライフィルムレジストをラミネートすると共に、露光現像を行ってめっきレジスト6を形成した。

【0036】(6) 前記配線板をフッ化水素酸ーブドウ糖 水溶液に浸漬し、再度Pdを活性化させた。このときの処 理温度は30℃、処理時間は10分である。

【0037】(7) 前記配線板を、表2に示す組成の無電解銅めっき液に直ちに浸漬し、その状態で15時間保持することにより、めっき膜の厚さ約 35μ m, $L/S=50\mu$ 10 $m/50\mu$ mの導体回路を形成した。

【0038】(8) さらに、レジスト6を除去し、レジスト6下に存在した触媒を除去した後、工程(1) ~(7) を繰り返すことにより図3に示す片面3層のビルドアップ多層プリント配線板を得た。

【0039】 (実施例3) 実施例2の工程(1) ~(8) を 基板両面に繰り返し行うことにより図4に示す6層板の ビルドアップ多層プリント配線板を得た。

【0040】(比較例1) エッチングにより内層回路を 形成した基板表面を、黒化還元処理を施した後、実施例 20 1と同様に層間絶縁材層を形成し、さらに、粗化し、め っきすることにより、ビルドアップ多層プリント配線板 を得た。

【0041】(比較例2)内層回路形成後、黒化還元処理を施すことにより、内層回路ー黒化還元処理層ー絶縁層ー内層回路ー黒化還元処理層ー絶縁層ー外層パターンという構成の片面3層のビルドアップ多層プリント配線板を得た。

【0042】 (比較例3) 内層回路を形成した基板の両面に比較例2の構成を作成することにより、6層のビル30 ドアップ多層プリント配線板を得た。

【0043】以上のようにして作成したビルドアップ多層プリント配線板について、-65℃×15分,常温×10分,125℃×15分の気相ヒートサイクル試験による耐ヒートサイクル特性、およびハンダ浴に260℃で15秒間浸漬した後の絶縁層剥離の有無等を調べた。その結果を表3に示す。

【0044】表3に示す結果から明らかなように、本発明にかかる多層プリント配線板は、従来技術による配線板に比べて、耐ヒートサイクル特性が著しく向上することを確認した。

[0045]

【表3】

*

40

		*1 耐ヒートサイクル性	はんだ耐熱
実	1	1000サイクル 0K	剥離無
施	2	n	,
例	3	. "	n
比	1	350	"
較	2	300	"
例	3	300	n

*1:耐ヒートサイクル性~絶縁層が剥離を生じない最大サイクル数

[0046]

【発明の効果】以上説明したように本発明によれば、耐 ヒートサイクル特性に優れた多層プリント配線板を極め て容易に製造することができる。

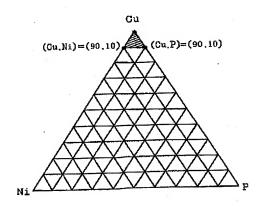
【図面の簡単な説明】

【図1】Ni-P-Cu共晶めっきにより析出した粗化層の 組成を示す図である。

【図2】本発明の一実施例を示す製造工程図である。

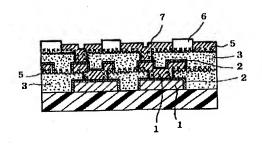
【図3】実施例2で得られた多層プリント配線板を示す 図である。

【図1】

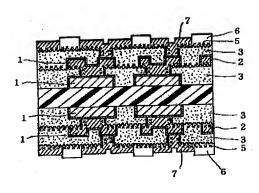


- *【図4】実施例3で得られた多層プリント配線板を示す 図である。
- 20 【符号の説明】
 - 1 内層回路
 - 粗化層 (Ni-P-Cu共晶めっき)
 - 3 層間絶縁材層
 - 4 開口
 - 5 PdーSnコロイド
 - 6 めっきレジスト
 - 7 導体回路

【図3】



【図4】



【図2】

